

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
28. Oktober 2004 (28.10.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2004/092150 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C07D 301/12**

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/004104

(22) Internationales Anmeldedatum:  
16. April 2004 (16.04.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
103 17 519.9 16. April 2003 (16.04.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]**; 67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **GÖBBEL, Hans-Georg [DE/DE]**; Im Mosenborn 33, 67169 Kallstadt (DE). **BASSLER, Peter [DE/DE]**; Maria-Mandel-Str. 18, 68519 Viernheim (DE). **TELES, Joaquim, H. [PT/DE]**; Reiherstr. 29a, 67166 Otterstadt (DE). **RUDOLF, Peter [DE/DE]**; Rautenthalermühle 12, 68526 Ladenburg (DE).

(74) Anwalt: **ISENBRUCK, Günter**; Isenbruck Bösl Hörschler Wichmann Huhn, Theodor-Heuss-Anlage 12, 68165 Mannheim (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

Zur Erklärung der Zweiibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING PROPYLENE OXIDE

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON PROPYLENOXID

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing propylene oxide, comprising steps (iii) and (iv): (iii) separating propylene oxide by distillation out from a mixture (G1) containing propylene oxide and at least one solvent while using a distillation column during which a bottom flow and a vapor flow essentially containing propylene oxide are obtained; (iv) compressing the vapor flow obtained according to step (iii) by means of at least one compressor while obtaining a compressed vapor.

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid, mindestens umfassend die Schritte (iii) und (iv): (iii) Destillative Abtrennung von Propylenoxid aus einem Gemisch (G1), enthaltend Propylenoxid und mindestens ein Lösungsmittel, unter Verwendung einer Destillationskolonne, wobei ein Sumpfstrom und ein Brüdenstrom, im Wesentlichen enthaltend Propylenoxid, erhalten wird; (iv) Komprimierung des gemäß (iii) erhaltenen Brüdenstroms mittels mindestens eines Verdichters unter Erhalt eines verdichteten Brüden.

WO 2004/092150 A1

5

## Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid, 10 wobei im Rahmen dieses Verfahrens ein Gemisch, das im wesentlichen Propylenoxid und mindestens ein Lösungsmittel, das bevorzugt Methanol ist, enthält, destillativ aufgearbeitet wird. Im Rahmen dieser Aufarbeitung wird ein Brüden einer Destillationskolonne, der im Wesentlichen Propylenoxid enthält, verdichtet, wodurch ein gasförmiger, unter einem bestimmten Druck stehender Brüden erhalten wird. Gemäß einer bevorzugten 15 Ausführungsform wird die in dem komprimierten Brüden enthaltene Energie zumindest teilweise in das Destillationsverfahren zurückgeführt, wobei beispielsweise mindestens ein Verdampfer der Destillationskolonne betrieben wird. Gemäß weiterer bevorzugter Ausführungsformen umfasst die vorliegende Erfindung weitere Aspekte, die sich hinsichtlich des Energiehaushaltes des Gesamtverfahrens positiv auswirken.

20

In den zahlreichen Veröffentlichungen, die es auf dem Gebiet der Herstellung von Propylenoxid gibt, existieren nur wenige, die integrierte Verfahren betreffen, bei denen in einem destillativen Schritt die Brüdenenergie sinnvoll in das Verfahren rückgeführt wird. Insbesondere gilt dies daher für Verfahren, bei denen Propylenoxid von Lösungsmittel oder Lösungsmittelpuren destillativ getrennt wird.

Die WO 02/14298 A1 beschreibt ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung eines Olefinoxids. Im Rahmen eines Verfahrensschrittes wird offenbart, dass die Kondensationswärme, die am Kopf einer Kolonne gewonnen wird, für einige oder alle Destillationsprozesse des Gesamtverfahrens rückgewonnen werden kann. In der in Rede stehenden Kolonne wird dabei ein Gemisch destillativ getrennt, das Lösungsmittel, Sauerstoff und Inertgas enthält. Spezielle Verfahrensführungen sind für die Rückführung der Kondensationswärme nicht angegeben.

35 Die WO 00/07965 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid, bei dem aus einem Gemisch über Kopf einer Destillationskolonne ein Gemisch aus Propen, Pro-

pylenoxid und Methanol abgetrennt wird, wobei in einem Teilkondensator am Kopf der Kolonne der für die Trennung in der Kolonne benötigte Rücklauf kondensiert wird.

Wird bei der Herstellung von Propylenoxid ausgehend von Propen beispielsweise Methanol als Lösungsmittel eingesetzt, ist dies im Allgemeinen für den Reaktionsteil, d.h. für die Umsetzung des Propens mit einem Hydroperoxid wie beispielsweise Wasserstoffperoxid vorteilhaft, insbesondere, wenn als Katalysator zur Umsetzung ein Tiansilikatalkatalysator vom Typ TS-1 eingesetzt wird. Andererseits wird die Reinigung des Propylenoxids durch die Anwesenheit von Methanol erschwert.

Bei Normaldruck oder höheren Drücken, die sich im Wesentlichen zwischen 1 und 5 bar bewegen, ist die destillative Trennung von Propylenoxid und Methanol aufgrund des schleppenden Azeotrops nur unter gleichzeitiger Verwendung einer Destillationskolonnen mit sehr vielen theoretischen Trennstufen und Einstellung eines sehr hohen Rücklaufverhältnisses möglich.

Im Bereich niedrigerer Drücke ist die Trennaufgabe einfacher, wobei sich jedoch der niedrige Druck nachteilig auf die Kondensationstemperatur auswirkt, denn die Kondensationstemperatur, die, je nach Druck, beispielsweise bei Werten von ca. 15 °C liegen kann, ist mit der Bereitstellung einer hohen Kondensationskälteleistung verknüpft. Gerade im großtechnischen Maßstab fallen hier enorme Kosten an.

Eine der Aufgaben, die der vorliegenden Erfindung zugrunde lag, war es daher, ein Verfahren bereitzustellen, das im Vergleich zu den im Stand der Technik beschriebenen Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid ein deutlich verbesserte Energiebilanz aufweist.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid, mindestens umfassend die Schritte (iii) und (iv)

- 30 (iii) Destillative Abtrennung von Propylenoxid aus einem Gemisch (G1), enthaltend Propylenoxid und mindestens ein Lösungsmittel, unter Verwendung einer Destillationskolonne, wobei ein Sumpfstrom und ein Brüdenstrom, im Wesentlichen enthaltend Propylenoxid, erhalten wird;
- (iv) Komprimierung des gemäß (iii) erhaltenen Brüdenstroms mittels mindestens eines Verdichters unter Erhalt eines verdichteten Brüden.

Als das mindestens eine gemäß (iii) im Gemisch (G1) enthaltene Lösungsmittel ist grundsätzliches jedes Lösungsmittel denkbar, das im Rahmen des Herstellungsprozesses von Propylenoxid eingesetzt wird.

5 Insbesondere bevorzugt sind als Lösungsmittel hierbei etwa

- Wasser;
- Alkohole, bevorzugt Alkohole mit weniger als 6 Kohlenstoffatomen, weiter bevorzugt Methanol, Ethanol, Propanole, Butanole, Pentanole;
- Diole oder Polyole, bevorzugt solche mit weniger als 6 Kohlenstoffatomen;
- 10 - Ether wie beispielsweise Diethylether, Tetrahydrofuran, Dioxan, 1,2-Diethoxyethan, 2-Methoxyethanol;
- Ester wie beispielsweise Methylacetat oder Butyrolacton;
- Amide wie beispielsweise Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylpyrrolidon;
- 15 - Ketone wie beispielsweise Aceton;
- Nitrile wie beispielsweise Acetonitril;
- oder Gemische aus zwei oder mehr der genannten Verbindungen.

20 Ganz besonders bevorzugt wird im erfindungsgemäßen Verfahren ein Gemisch (G1) eingesetzt, das neben Propylenoxid als Lösungsmittel Methanol oder Wasser oder Wasser und Methanol enthält. Weiter besonders bevorzugt enthält das Gemisch (G1) Methanol als Lösungsmittel.

25 Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass das mindestens eine Lösungsmittel Methanol ist.

Der Lösungsmittelgehalt und besonders bevorzugt der Methanolgehalt des gemäß (iii) aus dem Gemisch (G1) abgetrennten Propylenoxids liegt im allgemeinen im Bereich von höchstens 500 ppm, bevorzugt von höchstens 200 ppm, weiter bevorzugt von 30 höchstens 100 ppm, weiter bevorzugt von höchstens 50 ppm, weiter bevorzugt von höchstens 20 ppm, besonders bevorzugt von höchstens 15 ppm und insbesondere bevorzugt von höchstens 10 ppm, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der abgetrennten Propylenoxidfraktion.

35 Als Destillationskolonne kann im Wesentlichen jede beliebige Kolonne eingesetzt werden. Insbesondere bevorzugt ist eine Destillationskolonne, die als Packungskolonne

ausgestaltet ist, wobei weiter bevorzugt eine Packungskolonne mit geordneten Packungen eingesetzt wird. Eine solche Packungskolonne weist eine hohe Trennleistung pro Meter Packung sowie einen nur sehr geringen Druckverlust auf.

5    Während die genannten geordneten Packungen im Wesentlichen beliebig ausgestaltet sein können, sind solche Packungen bevorzugt, die eine spezifische Oberfläche im Bereich von 100 bis 750 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> aufweisen. Es können dabei Blechpackungen beispielsweise der Fa. Montz (Typ B1 100 bis B1 500) oder der Fa. Sulzer ChemTech (Typ Mellapak 125 bis Mellapak 750) oder Gewebepackungen der Fa. Montz (Typ A3 500 bis A3 10 750) oder der Fa. Sulzer ChemTech (Typ BX oder CY) eingesetzt werden. Die Angabe m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> bezieht sich auf die geometrische Oberfläche des für die Packung eingearbeiteten Materials pro Kubikmeter Packung.

15    Während die Destillation gemäß (iii) generell bei sämtlichen geeigneten Bedingungen durchgeführt werden kann, sind im Rahmen der vorliegenden Erfindung Ausführungsformen der Destillation gemäß (iii) bevorzugt, bei denen das Gemisch (G1) unter Vakuum aufgetrennt wird. Unter dem Begriff „Vakuumdestillation“, wie er im Rahmen der vorliegenden Erfindung verwendet wird, wird jede Destillation verstanden, die bei einem Druck von weniger als 1,013 bar durchgeführt wird.

20    Daher wird die Destillation gemäß (iii) im allgemeinen bei Drücken durchgeführt, die im Bereich von weniger als 1,013 bar, bevorzugt in einem Bereich von höchstens 1 bar, weiter bevorzugt in einem Bereich von 300 bis 900 mbar, weiter bevorzugt in einem Bereich von 400 bis 800 mbar und besonders bevorzugt in einem Bereich von 450 bis 25 750 mbar liegen.

30    Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass die zur destillativen Abtrennung gemäß (iii) verwendete Destillationskolonne bei einem Druck im Bereich von 450 bis 750 mbar betrieben wird.

35    Gemäß Schritt (iv) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der am Kopf der Destillationskolonne erhaltene Brüden, der im Wesentlichen aus Propylenoxid besteht, verdichtet. Diese Verdichtung kann generell gemäß sämtlicher geeigneter Methoden erfolgen. Insbesondere kann der Brüden mechanisch oder thermisch verdichtet werden, wobei die Verdichtung in einem oder mehreren Vorrichtungen erfolgen kann. Demgemäß ist es

möglich, den Brüden in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung mechanisch zu komprimieren oder den Brüden in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung thermisch zu komprimieren oder den Brüden zunächst in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung mechanisch zu komprimieren und sodann in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung thermisch zu komprimieren oder den Brüden zunächst in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung thermisch zu komprimieren und sodann in mindestens einer Verdichtungsvorrichtung mechanisch zu komprimieren.

5 Als Vorrichtungen zur mechanischen Komprimierung sind etwa Drehkolbenverdichter, Schraubenverdichter, Turboverdichter in axialer oder radialer Bauart, Membranverdichter oder Gebläse zu nennen. Zur erfindungsgemäßen Verdichtung kann eine dieser Vorrichtungen oder eine Kombination aus zwei oder mehr dieser Vorrichtungen eingesetzt werden, wobei jeder der eingesetzten Verdichter einstufig oder mehrstufig ausgeführt sein kann.

10 15 Als Vorrichtung zur thermischen Verdichtung ist etwa ein Dampfstrahlverdichter zu nennen, der entweder mit einer starren oder mit einer regelbaren Treibdüse ausgestattet sein kann.

20 Besonders bevorzugt wird der Brüden im Rahmen der vorliegenden Erfindung mechanische verdichtet, wobei wiederum bevorzugt die Verdichtung in einer einzigen Vorrichtung erfolgt. Wiederum bevorzugt ist dabei der Einsatz eines Turboverdichters, und ganz besonders bevorzugt der Einsatz eines einstufigen Einwellenverdichters.

25 Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass die Verdichtung des Brüden mit einem Turboverdichter erfolgt.

30 Gemäß einer weiter bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahren wird der Brüden mittels des bevorzugt eingesetzten mechanischen Verdichters derart komprimiert, dass sich der Brüden nach dem Verlassen des Verdichters unter einem Druck in einem Bereich von im allgemeinen 1,5 bis 5 bar, bevorzugt von 2 bis 4 bar und besonders bevorzugt von 2,5 bis 3,5 bar befindet.

35 Im Allgemeinen wird der Brüden durch die Komprimierung auf eine Temperatur gebracht, die mindestens 1 °C höher liegt als die Temperatur des im Sumpf der Destillati-

onskolonne verdampfenden Mediums. Bevorzugt wird der Brüden durch die Komprimierung auf eine Temperatur gebracht, die im Bereich von 2 bis 25 °C, weiter bevorzugt in einem Bereich von 5 bis 20 °C und besonders bevorzugt in einem Bereich von 8 bis 20 °C höher liegt als die Temperatur des in der Destillationskolonne verdampfenden Mediums.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass der Brüden gemäß (iv) auf einen Druck im Bereich von 2 bis 5 bar komprimiert wird und der komprimierte Brüden eine Temperatur aufweist, die in einem Bereich von 8 bis 20 °C über der Temperatur des in der Destillationskolonne gemäß (iii) verdampfenden Mediums liegt.

Durch die erfindungsgemäße Verdichtung ermöglicht es das erfindungsgemäße Verfahren daher, den wie oben beschrieben günstigen Druckbereich der Destillation von unter 1,013 bar, bevorzugt den Bereich von 450 bis 750 mbar, zu verwenden, ohne den Nachteil der niedrigen Kondensationstemperatur und der damit zur Verfügung zu stellenden hohen Kälteleistung in Kauf nehmen zu müssen.

In Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Zulaufs und der geforderten Reinheit des Propylenoxids hinsichtlich der Restkonzentration an Lösungsmittel, bevorzugt Methanol, ergibt sich eine Verdichterleistung im Bereich von 3 bis 9 MW. Die entsprechende Kondensations-/Kälteleistung, die aufzubringen wäre, läge bei einer Temperatur im Bereich von 12 bis 20 °C in einem Bereich von 15 bis 25 MW.

Die durch die Komprimierung im Brüden zusätzlich gespeicherte Energie kann beispielsweise bevorzugt in irgendein Verfahren eingespeist werden, wobei die Rückführung in das erfindungsgemäße Verfahren bevorzugt ist. Generell kann die Energiemenge ganz oder teilweise jedem beliebigen Verfahrensschritt zugeführt werden. Besonders bevorzugt ist hierbei weiterhin die Rückführung mindestens eines Teils der im komprimierten Brüden gespeicherten Energie in den destillativen Schritt gemäß (iii). Besonders bevorzugt ist hierbei wiederum, dass durch die im komprimierten Brüden gespeicherte Energie mindestens ein Verdampfer der Destillationskolonne wie beispielsweise mindestens ein Zwischenverdampfer oder der Hauptverdampfer oder mindestens ein Zwischenverdampfer und der Hauptverdampfer betrieben werden. Auf diese Art und Weise wird im erfindungsgemäßen Verfahren durch diese integrierte Verfahrensführung eine Wärmepumpe realisiert.

Gemäß einer ganz besonders bevorzugten Ausführungsform wird der komprimierte gasförmige Brüden in mindestens einem Kondensator verflüssigt und die Kondensationswärme zumindest teilweise zum Betrieb mindestens eines der oben genannten Verdampfer eingesetzt. Besonders bevorzugt ist der Betrieb des Hauptverdampfers der gemäß (iii) eingesetzten Destillationskolonne.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das zusätzlich den folgenden Schritt (v) umfasst

10 (v) Kondensation des gemäß (iv) erhaltenen Brüden unter Rückführung mindestens einen Teils der Kondensationswärme in mindestens einen in der gemäß (iii) verwendeten Destillationskolonne eingesetzten Verdampfer.

15 Die Kondensation gemäß (v) erfolgt hierbei in einem Verdampfer, der im Wesentlichen beliebig ausgestaltet sein kann. Beispiele für die Ausführungsform des Verdampfers sind etwa Naturumlaufverdampfer, Zwangsumlaufverdampfer oder Fallfilmverdampfer. Bevorzugt wird im Rahmen der vorliegenden Erfindung ein Verdampfer eingesetzt, der als Naturumlaufverdampfer ausgestaltet ist.

20 Das nach Verlassen des mindestens einen Kondensators gemäß (v) abgekühlte Kondensat weist im erfindungsgemäßen Verfahren eine Temperatur im Bereich von im allgemeinen 40 bis 75 °C, bevorzugt im Bereich von 45 bis 70 °C und besonders bevorzugt im Bereich von 45 bis 65 °C auf.

25 Generell ist es möglich, zum Betrieb des Verdampfers lediglich die aus der Kondensation des verdichteten Brüden wie oben beschrieben gewonnene Energie einzusetzen. Gemäß einer weiter bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird zusätzlich mindestens ein weiterer Verdampfer vorgesehen, der dazu dient, Unterschiede in der Kondensations- und Verdampfungsenthalpie aufzufangen, und der demgemäß als Zusatz- oder Nebenverdampfer fungiert.

35 Dieser mindestens eine zusätzliche Verdampfer kann im Wesentlichen beliebig ausgestaltet sein kann. Beispiele für die Ausführungsform des mindestens einen zusätzlichen Verdampfers sind etwa Naturumlaufverdampfer, Zwangsumlaufverdampfer oder Fallfilmverdampfer. Bevorzugt wird im Rahmen der vorliegenden Erfindung ein Verdampfer eingesetzt, der als Naturumlaufverdampfer ausgestaltet ist.

Gemäß einer weiter bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird mindestens ein Teil des gemäß (v) erhaltenen Kondensats in mindestens einem weiteren Wärmetauscher weiter abgekühlt, womit wiederum Energie gewonnen wird, die irgend einem anderen Verfahren zugeführt oder bevorzugt in das erfindungsgemäße Verfahren rückgeführt werden kann.

5 Bevorzugt wird dieser Teil des Kondensats in dem mindestens einen weiteren Wärmetauscher auf eine Temperatur im Bereich von 10 bis 30 °C und besonders bevorzugt im 10 Bereich von 12 bis 20 °C abgekühlt.

In einer ganz besonders bevorzugten Ausführungsform wird das nach Verlassen dieses 15 mindestens einen Wärmetauschers abgekühlte Kondensat als Rücklauf auf die gemäß (iii) eingesetzte Destillationskolonne rückgeführt.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das zusätzlich folgenden Schritt (vi) umfasst

(vi) Abkühlen mindestens eines Teils des gemäß (v) erhaltenen Kondensats in mindestens einem Wärmetauscher auf eine Temperatur im Bereich von 10 bis 30 °C und 20 Rückführung dieses Teils des abgekühlten Kondensats als Rücklauf auf die gemäß (iii) verwendete Destillationskolonne.

Die in dem Wärmetauscher gemäß (vi) zum Abkühlen des Kondensats aufzubringende Kälteleistung wird im erfindungsgemäßen Verfahren bevorzugt durch mindestens einen 25 Teilprozess des erfindungsgemäßen Verfahrens bereitgestellt. Beispielsweise ist es denkbar, dass in dem Wärmetauscher gemäß (vi) die Kälteleistung einem Kältemittel entzogen wird, das an anderer Stelle des Verfahrens die derart entzogene Kältemenge wieder aufnimmt. Ebenso ist es jedoch denkbar, dass in dem Wärmetauscher die aufgenommene Kälteleistung direkt von einem Stoff oder einem Stoffgemisch, das generell in 30 jedem möglichen Aggregatzustand vorliegen kann, übertragen wird. Beispielsweise bevorzugt wird im erfindungsgemäßen Verfahren ein komprimierter Strom in ein Kompartiment des Wärmetauschers hinein entspannt und zumindest teilweise, bevorzugt vollständig verdampft und die dabei abgegebene Kälteleistung auf das sich in einem anderen Kompartiment des Wärmetauschers befindliche Kondensat übertragen. Wie 35 derum bevorzugt ist hierbei eine Ausführungsform, gemäß der dieser komprimierte Strom ein komprimierter Propenstrom ist. Insbesondere bevorzugt handelt es sich bei

diesem Propenstrom um einen komprimierten Propenstrom, der zunächst, wie beschrieben, in den Wärmetauscher hinein entspannt und im Wärmetauscher verdampft wird und der anschließend in dem wie unten beschriebenen Schritt (i) des erfindungsgemäßem Verfahrens eingesetzt wird.

5

Besonders bevorzugt wird der komprimierte Propenstrom in dem mindestens einen gemäß (vi) eingesetzten Verdampfer vollständig verdampft.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass in dem mindestens einen gemäß (vi) eingesetzten Wärmetauscher komprimiertes Propen unter Entspannung vollständig verdampft wird.

Beispielsweise bevorzugt ist der Propenstrom bei einer Temperatur im Bereich 5 bis 30 15 °C, bevorzugt von 10 bis 30 °C, weiter bevorzugt von 15 bis 30 °C und besonders bevorzugt von 20 bis 30 °C auf einen Druck im Bereich von 20 bis 35 bar komprimiert und wird erfindungsgemäß in Schritt (vi) auf einen Druck im Bereich von 4 bis 10 bar, bevorzugt 5 bis 9 bar und weiter bevorzugt 5 bis 8 bar entspannt und durch Zufuhr von 20 Wärme vollständig verdampft. Beispielsweise wird in etwa die Hälfte der Entspannungskälte des Propens durch diesen Schritt aufgebracht.

Die Entspannung des komprimierten Stroms gemäß (vi) erfolgt hierbei in einen Wärmetauscher hinein, der im Wesentlichen beliebig ausgestaltet sein kann. Beispiele für die Ausführungsform des Wärmetauschers sind etwa Rohrbündelwärmetauscher, Spiralförmige Wärmetauscher oder Plattenwärmetauscher. Bevorzugt wird im Rahmen der vorliegenden Erfindung ein Wärmetauscher eingesetzt, der als Rohrbündelwärmetauscher ausgestaltet ist.

Der gemäß (iii) erhaltene Sumpfstrom kann gemäß einer weiter bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens ebenfalls dazu verwendet werden, das erfindungsgemäße Verfahren energetisch noch integrierter zu gestalten.

Diesbezüglich bevorzugt wird die in dem gemäß (iii) erhaltenen Sumpfstrom enthaltene Wärmemenge zumindest teilweise eingesetzt, um das Gemisch (G1) aufzuheizen, bevor 35 es in die Destillationskolonne gemäß (iii) eingebracht wird. Insbesondere bevorzugt

- 10 -

wird hierbei ein Wärmetauscher eingesetzt, der als Gegenstromwärmetauscher (Plattenwärmetauscher) ausgestaltet ist.

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass die im gemäß (iii) erhaltenen Sumpfstrom gespeicherte Energie zumindest teilweise zur Aufheizung des Gemisches (G1) vor dessen destillativer Auf trennung gemäß (iii) eingesetzt wird.

Das gemäß (iii) eingesetzte Gemisch (G1) resultiert aus im Wesentlichen beliebigen Verfahrensschritten bei der Herstellung von Propylenoxid unter der Maßgabe, dass ein wie oben beschriebenes Gemisch (G1) erhalten wird.

Besonders bevorzugt wird das Gemisch (G1) aus einem Verfahren erhalten, in dem Propen mit einem Hydroperoxid in Methanol als Lösungsmittel in Anwesenheit eines Zeolith-Katalysator umgesetzt wird.

Im erfindungsgemäßen Verfahren wird zur Umsetzung des Propens mindestens ein Hydroperoxid eingesetzt. Im Rahmen der vorliegenden Anmeldung wird unter dem Begriff „Hydroperoxid“ eine Verbindung der allgemeinen Formel ROOH verstanden.

Details bezüglich der Hydroperoxidherstellung und von unter anderem im Rahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens einsetzbaren Hydroperoxiden sind in der DE-A 198 35 907 zu entnehmen, deren diesbezüglicher Inhalt in den Kontext der vorliegenden Anmeldung aufgenommen wird. Beispiele für erfindungsgemäß einsetzbare Hydroperoxide sind unter anderem tert-Butylhydroperoxid, Ethylbenzolhydroperoxid, tert-Amylhydroperoxid, Cumenshydroperoxid, Cyclohexylhydroperoxid, Methylcyclohexylhydroperoxid, Tetrahydronaphthalinhydroperoxid, Isobutylbenzolhydroperoxid, Ethyl-naphthalinhydroperoxid, Persäuren wie beispielsweise Peressigsäure oder Wasserstoffperoxid. Auch Gemische aus zwei oder mehr Hydroperoxiden sind erfindungsgemäß einsetzbar. Bevorzugt wird im Rahmen der vorliegenden Erfindung Wasserstoffperoxid als Hydroperoxid eingesetzt, wobei weiter bevorzugt eine wässrige Wasserstoffperoxidlösung eingesetzt wird.

Bezüglich der im Rahmen der vorliegenden Erfindung einsetzbaren Zeolith-Katalysatoren existieren keine besonderen Beschränkungen.

Zeolithe sind bekanntermaßen kristalline Alumosilikate mit geordneten Kanal- und Käfigstrukturen, die Mikroporen aufweisen, die vorzugsweise kleiner als ungefähr 0,9 nm sind. Das Netzwerk solcher Zeolithe ist aufgebaut aus  $\text{SiO}_4$ - und  $\text{AlO}_4$ -Tetraedern, die über gemeinsame Sauerstoffbrücken verbunden sind. Eine Übersicht der bekannten Strukturen findet sich beispielsweise bei W. M. Meier, D. H. Olson und Ch. Baerlocher, "Atlas of Zeolite Structure Types", Elsevier, 5. Auflage, Amsterdam 2001.

Es sind nun auch Zeolithe bekannt, die kein Aluminium enthalten und bei denen im Silikatgitter an Stelle des Si(IV) teilweise Titan als Ti(IV) steht. Diese Titanzeolithe, insbesondere solche mit einer Kristallstruktur von MFI-Typ, sowie Möglichkeiten zu ihrer Herstellung sind beispielsweise in der EP-A 0 311 983 oder EP-A 0 405 978 beschrieben. Außer Silicium und Titan können solche Materialien auch zusätzliche Elemente wie z. B. Aluminium, Zirkonium, Zinn, Eisen, Kobalt, Nickel, Gallium, Germanium, Bor oder geringe Menge an Fluor enthalten. In den Zeolith-Katalysatoren kann das Titan des Zeolithen teilweise oder vollständig durch Vanadium, Zirkonium, Chrom oder Niob oder einem Gemisch aus zwei oder mehr davon ersetzt sein. Das molare Verhältnis von Titan und/oder Vanadium, Zirkonium, Chrom oder Niob zur Summe aus Silicium und Titan und/oder Vanadium und/oder Zirkonium, und/oder Chrom und/oder Niob liegt in der Regel im Bereich von 0,01 : 1 bis 0,1 : 1.

Titanzeolithe, insbesondere solche mit einer Kristallstruktur vom MFI-Typ, sowie Möglichkeiten zu ihrer Herstellung sind beispielsweise in der WO 98/55228, EP-A 0 311 983 oder der EP-A 0 405 978 beschrieben, deren diesbezüglicher Umfang vollumfänglich in den Kontext der vorliegenden Anmeldung einbezogen wird.

Titanzeolithe mit MFI-Struktur sind dafür bekannt, dass sie über ein bestimmtes Muster bei der Bestimmung ihrer Röntgenbeugungsaufnahmen sowie zusätzlich über eine Gerüstschwingsungsbande im Infrarotbereich (IR) bei etwa  $960 \text{ cm}^{-1}$  identifiziert werden können und sich damit von Alkalimetalltitanaten oder kristallinen und amorphen  $\text{TiO}_2$ -Phasen unterscheiden.

Dabei sind im einzelnen Titan-, Germanium-, Tellur-, Vanadium-, Chrom-, Niob-, Zirkoniumhaltige Zeolithe mit Pentasil-Zeolith-Struktur, insbesondere die Typen mit röntgenografischer Zuordnung zur ABW-, ACO-, AEI-, AEL-, AEN-, AET-, AFG-, AFI-, AFN-, AFO-, AFR-, AFS-, AFT-, AFX-, AFY-, AHT-, ANA-, APC-, APD-, AST-, ATN-,

- 12 -

ATO-, ATS-, ATT-, ATV-, AWO-, AWW-, BEA-, BIK-, BOG-, BPH-, BRE-, CAN-, CAS-, CFI-, CGF-, CGS-, CHA-, CHI-, CLO-, CON-, CZP-, DAC-, DDR-, DFO-, DFT-, DOH-, DON-, EAB-, EDI-, EMT-, EPI-, ERI-, ESV-, EUO-, FAU-, FER-, GIS-, GME-, GOO-, HEU-, IFR-, ISV-, ITE-, JBW-, KFI-, LAU-, LEV-, LIO-, LOS-, LOV-, LTA-,  
5 LTL-, LTN-, MAZ-, MEI-, MEL-, MEP-, MER-, MFI-, MFS-, MON-, MOR-, MSO-, MTF-, MTN-, MTT-, MTW-, MWL-, NAT-, NES-, NON-, OFF-, OSI-, PAR-, PAU-, PHI-, RHO-, RON-, RSN-, RTE-, RTH-, RUT-, SAO-, SAT-, SBE-, SBS-, SBT-, SFF-, SGT-, SOD-, STF-, STI-, STT-, TER-, THO-, TON-, TSC-, VET-, VFI-, VNI-, VSV-, WIE-, WEN-, YUG-, ZON-Struktur sowie zu Mischstrukturen aus zwei oder mehr der  
10 vorgenannten Strukturen zu nennen. Denkbar sind für den Einsatz im erfindungsgemäßen Verfahren weiterhin titanhaltige Zeolithe mit der Struktur des ITQ-4, SSZ-24, TTM-1, UTD-1, CIT-1 oder CIT-5. Als weitere titanhaltige Zeolithe sind solche mit der Struktur des ZSM-48 oder ZSM-12 zu nennen.

15 Bevorzugt werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung Ti-Zeolithe mit MFI-, MEL- oder MFI/MEL-Mischstruktur eingesetzt. Als weiterhin bevorzugt sind im einzelnen die Ti-enthaltenden Zeolith-Katalysatoren, die im allgemeinen als „TS-1“, „TS-2“, „TS-3“ bezeichnet werden, sowie Ti-Zeolithe mit einer zu beta-Zeolith isomorphen Gerüststruktur zu nennen. Ganz besonders bevorzugt ist im Rahmen der vorliegenden Erfindung ein  
20 Zeolith-Katalysator vom TS-1-Typ.

Nach der Umsetzung des Propens mit bevorzugt Wasserstoffperoxid, wobei ein Gemisch (G0) erhalten wird, wird weiter bevorzugt aus diesem Gemisch (G0), enthaltend Propylenoxid, nicht umgesetztes Propen und Methanol, nicht umgesetztes Propen abgetrennt, was bevorzugt destillativ erfolgt.  
25

Demgemäß betrifft die vorliegende Erfindung auch ein Verfahren, wie oben beschrieben, das zusätzlich die Schritte (i) und (ii) umfasst:

(i) Umsetzung von Propen mit Wasserstoffperoxid in Anwesenheit eines Titansilikat-  
30 katalysators und Methanol als Lösungsmittel unter Erhalt eines Gemisches (G0), enthaltend Propylenoxid, nicht umgesetztes Propen und Methanol.

(ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Propens aus dem Gemisch (G0) unter Erhalt eines Gemisches (G1), enthaltend Propylenoxid und Methanol.

- 13 -

Die Umsetzung von Propen in Gegenwart von Methanol und des Titansilikatkatalysators mittels Wasserstoffperoxid kann in einer, zwei oder auch mehr Stufen durchgeführt werden, wobei die Umsetzung besonders bevorzugt in zwei Stufen durchgeführt wird.

5 Eine zweistufige Umsetzung findet beispielsweise folgendermaßen statt:

- (a) Umsetzung des Wasserstoffperoxids mit Propen unter Erhalt einer Mischung, umfassend Propylenoxid und nicht-umgesetztes Wasserstoffperoxid;
- (b) Abtrennung des nicht-umgesetzten Wasserstoffperoxids aus der aus Stufe (a) resultierenden Mischung;
- 10 (c) Umsetzung des abgetrennten Wasserstoffperoxids aus Stufe (b) mit Propen.

Demgemäß findet die Umsetzung von Propen mit Wasserstoffperoxid, wie dargestellt, in zwei Stufen (a) und (c) statt, wobei eine Abtrennstufe (b) zwischengeschaltet ist.

15 Die Abtrennung des Wasserstoffperoxids in der Abtrennstufe (b), kann im Rahmen der vorliegenden Erfindung nach allen gängigen Abtrennmethoden gemäß Stand der Technik durchgeführt werden.

20 Vorzugsweise erfolgt die Abtrennung des Wasserstoffperoxids destillativ. Je nach den Anforderungen des Verfahrens ist dabei eine Abtrennung in einer oder mehreren Destillationskolonnen möglich. Vorzugsweise wird im Rahmen einer Abtrennstufe eine Destillationskolonne eingesetzt.

25 Die Umsetzung von Propen mit Wasserstoffperoxid findet im erfindungsgemäßen Verfahren in einem dafür geeigneten Reaktor statt. Als Edukte der Umsetzung werden Propen, Wasserstoffperoxid und Methanol eingesetzt. Die Edukte können im Rahmen des Verfahrens einzeln oder vorzugsweise vor dem Zufluss in den Reaktor zu einem Strom vereinigt dem Reaktor zugeführt werden. Bevorzugt wird im erfindungsgemäßen Verfahren ein Strom dem Reaktor zugeleitet, welcher aus der Kombination der Edukte besteht. Dabei ist ein Strom bevorzugt, bei dem die Konzentrationen der einzelnen Edukte des Stroms so gewählt sind, dass der Strom flüssig und einphasig ist.

30

35 In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform ist es möglich, die Umsetzung in den Stufen (a) und (c) in zwei getrennten Reaktoren durchzuführen.

Als Reaktoren können selbstverständlich alle denkbaren, für die jeweilige Reaktion am besten geeigneten Reaktoren eingesetzt werden. Dabei ist der Begriff „ein Reaktor“ nicht auf einen einzigen Behälter beschränkt. Vielmehr ist es auch möglich, als Reaktor eine Rührkesselkaskade einzusetzen.

5

Bevorzugt werden als Reaktoren Festbettreaktoren verwendet. Weiter bevorzugt werden als Festbettreaktoren Festbettrohrreaktoren eingesetzt, wobei auch die Suspensionsfahrweise in mindestens einem der Reaktoren möglich ist.

10 Insbesondere bevorzugt werden bei den Umsetzungen in den Stufen (a) und (c) in zwei getrennten Reaktoren ein isothermer Festbettrohrreaktor und ein adiabatischer Festbettreaktor eingesetzt. Bevorzugt werden der isotherme Festbettrohrreaktor in der Stufe (a) und der adiabatische Festbettreaktor in der Stufe (b) eingesetzt.

15 Im Rahmen einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens enthält das Gemisch (G1) Propylenoxid in einem Anteil im Bereich von 5 bis 15 Gew.-%, bevorzugt von 6 bis 12 Gew.-% und besonders bevorzugt von 8 bis 10,5 Gew.-% und Methanol in einem Anteil im Bereich von 55 bis 85 Gew.-%, bevorzugt von 60 bis 80 Gew.-% und besonders bevorzugt von 65 bis 75 Gew.-% enthält.

20

Der Begriff „ein Brüdenstrom, im wesentlichen enthaltend Propylenoxid“, wie er im Rahmen der vorliegenden Anmeldung bezüglich des Brüdenstroms verwendet wird, der aus Schritt (iii) erhalten wird, bezeichnet einen Brüdenstrom, der einen Lösungsmittelgehalt von höchstens 500 ppm, bevorzugt von höchstens 200 ppm, weiter bevorzugt von

25 höchstens 100 ppm, weiter bevorzugt von höchstens 50 ppm, weiter bevorzugt von höchstens 20 ppm, besonders bevorzugt von höchstens 15 ppm und insbesondere bevorzugt von höchstens 10 ppm, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der abgetrennten Propylenoxidfraktion, aufweist.

30 Gegenüber dem aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren weist das erfindungsgemäße Verfahren unter anderem den Vorteil auf, dass es mit niedrigeren Rücklaufverhältnissen betrieben werden kann. Erfindungsgemäß liegen diese Rücklaufverhältnisse bevorzugt im Bereich von 4 bis 10. Unter anderem bevorzugte Rücklaufverhältnisse sind etwa 4, 5, 6, 7, 8, 9 oder 10.

35

Die vorliegende Erfindung wird anhand der nachfolgenden Beispiele näher erläutert.

**Beispiele**

**Vergleichsbeispiel 1:** Herkömmliche Auftrennung unter Erhalt einer Propylen-  
5 oxidfraktion mit einem Methanolgehalt von 20 ppm

Gemäß dem in der WO 00/07965 angegebenen Verfahren wird Propylenoxid ausgehend von Propen durch Umsetzung mit Wasserstoffperoxid in Methanol als Lösungsmittel unter Verwendung eines Titanzeolithkatalysators vom Typ TS-1 hergestellt. Aus dem  
10 nach der Abtrennung des überschüssigen Propens entstehenden Gemisch mit der unten aufgeführten Zusammensetzung wird Propylenoxid derart destillativ abgetrennt, dass die resultierende Propylenoxidfraktion eine Methanolkonzentration von 20 ppm aufweist.

15 Zusammensetzung des zu trennenden Gemischs:

Leichtsieder:	0,2 Gew.-%
Propylenoxid:	9,3 Gew.-%
Methanol:	70 Gew.-%
20 Methoxypropanole:	0,5 Gew.-%
Wasser:	18 Gew.-%
Hochsieder:	2 Gew.-%

25 Die Destillation wird bei einem Druck von 1,5 bar durchgeführt, so dass der Brüden im Kondensator mit zugänglichem Flusswasser bei einer Temperatur von etwa 42 °C kondensiert werden kann. Die Methanolkonzentration des Propylenoxidstromes beträgt 20 ppm. Die optimierte Trennung verläuft bei einem Rücklaufverhältnis von 18 und weist einen Energiebedarf für die obige Trennung von 2.650 kWh/t (Propylenoxidfraktion) auf.

30

**Vergleichsbeispiel 2:** Herkömmliche Auftrennung unter Erhalt einer Propylen-  
oxidfraktion mit einem Methanolgehalt von 10 ppm

35 Gemäß dem in der WO 00/07965 angegebenen Verfahren wird Propylenoxid ausgehend von Propen durch Umsetzung mit Wasserstoffperoxid in Methanol als Lösungsmittel

unter Verwendung eines Titanzeolithkatalysators vom Typ TS-1 hergestellt. Aus dem nach der Abtrennung des überschüssigen Propens entstehenden Gemisch mit der unten aufgeführten Zusammensetzung wird Propylenoxid derart destillativ abgetrennt, dass die resultierende Propylenoxidfraktion eine Methanolkonzentration von 10 ppm aufweist.

5 **Zusammensetzung des zu trennenden Gemischs:**

Leichtsieder:	0,2 Gew.-%
10 Propylenoxid:	9,3 Gew.-%
Methanol:	70 Gew.-%
Methoxypropanole:	0,5 Gew.-%
Wasser:	18 Gew.-%
Hochsieder:	2 Gew.-%

15 Die Destillation wird bei einem Druck von 1,5 bar durchgeführt, so dass der Brüden im Kondensator mit zugänglichem Flusswasser bei einer Temperatur von etwa 42 °C kondensiert werden kann. Die Methanolkonzentration des Propylenoxidstromes beträgt 10 ppm. Die optimierte Trennung verläuft bei einem Rücklaufverhältnis von 23 und weist 20 einen Energiebedarf für die obige Trennung von 3.280 kWh/t (Propylenoxidfraktion) auf.

25 **Beispiel 1      Erfindungsgemäße Auftrennung unter Erhalt einer Propylenoxidfraktion mit einem Methanolgehalt von 20 ppm**

Gemäß dem in der WO 00/07965 angegebenen Verfahren wird Propylenoxid ausgehend von Propen durch Umsetzung mit Wasserstoffperoxid in Methanol als Lösungsmittel unter Verwendung eines Titanzeolithkatalysators vom Typ TS-1 hergestellt. Aus dem 30 nach der Abtrennung des überschüssigen Propens entstehenden Gemisch mit der unten aufgeführten Zusammensetzung wird Propylenoxid derart destillativ abgetrennt, dass die resultierende Propylenoxidfraktion eine Methanolkonzentration von 20 ppm aufweist.

35 **Zusammensetzung des zu trennenden Gemischs:**

	Leichtsieder:	0,2 Gew.-%
	Propylenoxid:	9,3 Gew.-%
	Methanol:	70 Gew.-%
	Methoxypropanole:	0,5 Gew.-%
5	Wasser:	18 Gew.-%
	Hochsieder:	2 Gew.-%

Die Destillation wird bei einem Druck von 500 mbar unter Verwendung eines Brüdenverdichters und Einsatz des verdichteten Brüden zum Betrieb des Naturumlaufverdampfers der Kolonne durchgeführt. Der Brüden wird auf einen Druck von etwa 2,8 bar mit Hilfe eines Turboverdichters (einstufiger Wellenverdichter mit 2 x 4 Laufrädern) verdichtet, wobei sich im verdichteten Brüden eine Temperatur von etwa 68 °C einstellt. Der Bedarf des Verdichters an elektrischer Energie beträgt etwa 6 MW. Die Verdampfungstemperatur im Umlaufverdampfer der Kolonne liegt bei etwa 54 °C.

15 Das Rücklaufverhältnis bei dieser Trennung (Methanolrestkonzentration von 20 ppm im Propylenoxidstrom) beträgt etwa 8. Dabei ergibt sich neben der Wärmekopplung ein zusätzlicher Energiebedarf für den Antrieb des Verdichters von etwa 180 kWh/t (Propylenoxidfraktion).

20

**Beispiel 2** Erfindungsgemäße Auftrennung unter Erhalt einer Propylenoxidfraktion mit einem Methanolgehalt von 10 ppm

25 Gemäß dem in der WO 00/07965 angegebenen Verfahren wird Propylenoxid ausgehend von Propen durch Umsetzung mit Wasserstoffperoxid in Methanol als Lösungsmittel unter Verwendung eines Titanzeolithkatalysators vom Typ TS-1 hergestellt. Aus dem nach der Abtrennung des überschüssigen Propens entstehenden Gemisch mit der unten aufgeführten Zusammensetzung wird Propylenoxid derart destillativ abgetrennt, dass 30 die resultierende Propylenoxidfraktion eine Methanolkonzentration von 10 ppm aufweist.

**Zusammensetzung des zu trennenden Gemischs:**

35	Leichtsieder:	0,2 Gew.-%
	Propylenoxid:	9,3 Gew.-%

- 18 -

Methanol: 70 Gew.-%  
Methoxypropanole: 0,5 Gew.-%  
Wasser: 18 Gew.-%  
Hochsieder: 2 Gew.-%

5

Die Destillation wird bei einem Druck von 500 mbar unter Verwendung eines Brüdenverdichters und Einsatz des verdichteten Brüden zum Betrieb des Naturumlaufverdampfers der Kolonne durchgeführt. Der Brüden wird auf einen Druck von etwa 2,8 bar mit Hilfe eines Turboverdichters (einstufiger Wellenverdichter mit 2 x 4 Laufrädern) verdichtet, wobei sich im verdichteten Brüden eine Temperatur von etwa 68 °C einstellt. 10 Der Bedarf des Verdichters an elektrischer Energie beträgt etwa 8 MW. Die Verdampfungstemperatur im Umlaufverdampfer der Kolonne liegt bei etwa 54 °C.

15 Das Rücklaufverhältnis bei dieser Trennung (Methanolrestkonzentration von 10 ppm im Propylenoxidstrom) beträgt etwa 9. Dabei ergibt sich neben der Wärmekopplung ein zusätzlicher Energiebedarf für den Antrieb des Verdichters von etwa 200 kWh/t (Propylenoxidfraktion).

**Patentansprüche**

5

1. Verfahren zur Herstellung von Propylenoxid, mindestens umfassend die Schritte (iii) und (iv)
  - (iii) Destillative Abtrennung von Propylenoxid aus einem Gemisch (G1), enthaltend Propylenoxid und mindestens ein Lösungsmittel, unter Verwendung einer Destillationskolonne, wobei ein Sumpfstrom und ein Brüdenstrom, im Wesentlichen enthaltend Propylenoxid, erhalten wird;
  - (iv) Komprimierung des gemäß (iii) erhaltenen Brüdenstroms mittels mindestens eines Verdichters unter Erhalt eines verdichteten Brüden.
- 15 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das mindestens eine Lösungsmittel Methanol ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die zur destillativen Abtrennung gemäß (iii) verwendete Destillationskolonne bei einem Druck im Bereich von 450 bis 750 mbar betrieben wird.
- 20 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Verdichtung des Brüden mit einem Turboverdichter erfolgt.
- 25 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet ist, dass der Brüden gemäß (iv) auf einen Druck im Bereich von 2 bis 5 bar komprimiert wird und der komprimierte Brüden eine Temperatur aufweist, die in einem Bereich von 8 bis 20 °C über der Temperatur des in der Destillationskolonne gemäß (iii) verdampfenden Mediums liegt.
- 30 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, zusätzlich umfassend den folgenden Schritt (v)
  - (v) Kondensation des gemäß (iv) erhaltenen Brüden unter Rückführung mindestens einen Teils der Kondensationswärme in mindestens einen in der gemäß (iii) verwendeten Destillationskolonne eingesetzten Verdampfer.

35

- 20 -

7. Verfahren nach Anspruch 6, zusätzlich umfassend folgenden Schritt (vi)
  - (vi) Abkühlen mindestens eines Teils des gemäß (v) erhaltenen Kondensats in mindestens einem Wärmetauscher auf eine Temperatur im Bereich von 10 bis 30 °C und Rückführung dieses Teils des abgekühlten Kondensats als Rücklauf auf die gemäß (iii) verwendete Destillationskolonne.
8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass in dem mindestens einen gemäß (vi) eingesetzten Wärmetauscher komprimiertes Propen unter Entspannung vollständig verdampft wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass die im gemäß (iii) erhaltenen Sumpfstrom gespeicherte Energie zumindest teilweise zur Aufheizung des Gemisches (G1) vor dessen destillativer Auftrennung gemäß (iii) eingesetzt wird.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, zusätzlich umfassend die Schritte (i) und (ii)
  - (i) Umsetzung von Propen mit Wasserstoffperoxid in Anwesenheit eines Titan-silikatkatalysators und Methanol als Lösungsmittel unter Erhalt eines Gemisches (G0), enthaltend Propylenoxid, nicht umgesetztes Propen und Methanol.
  - (ii) Abtrennung des nicht umgesetzten Propens aus dem Gemisch (G0) unter Erhalt eines Gemisches (G1), enthaltend Propylenoxid und Methanol.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP2004/004104

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 C07D301/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 00/07965 A (BASF AG ; BASSLER PETER (DE); RESCH PETER (DE); WALCH ANDREAS (DE); WE) 17 February 2000 (2000-02-17) cited in the application claims 1-11; examples 1,2	1-10

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the International filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority, claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed Invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed Invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

7 September 2004

Date of mailing of the International search report

14/09/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Schmid, A

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/004104

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 0007965	A 17-02-2000	DE	19835907 A1	17-02-2000
		AT	263744 T	15-04-2004
		AU	5619999 A	28-02-2000
		CA	2339710 A1	17-02-2000
		CN	1322186 T	14-11-2001
		DE	59909131 D1	13-05-2004
		WO	0007965 A1	17-02-2000
		EP	1102733 A1	30-05-2001
		ID	27449 A	12-04-2001
		JP	2002522402 T	23-07-2002
		US	6479680 B1	12-11-2002
		ZA	200101003 A	06-02-2002

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/004104

A. Klassifizierung des Anmeldungsgegenstandes  
IPK 7 C07D301/12

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie <sup>a</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 00/07965 A (BASF AG ; BASSLER PETER (DE); RESCH PETER (DE); WALCH ANDREAS (DE); WE) 17. Februar 2000 (2000-02-17) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1-11; Beispiele 1,2	1-10

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

<sup>a</sup> Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen Anmeldeatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldeatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldeatum oder dem Prioritätsatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

\*& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

Absendedatum des Internationalen Recherchenberichts

7. September 2004

14/09/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlanta 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Schmid, A

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/004104

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0007965	A 17-02-2000	DE 19835907 A1	17-02-2000
		AT 263744 T	15-04-2004
		AU 5619999 A	28-02-2000
		CA 2339710 A1	17-02-2000
		CN 1322186 T	14-11-2001
		DE 59909131 D1	13-05-2004
		WO 0007965 A1	17-02-2000
		EP 1102733 A1	30-05-2001
		ID 27449 A	12-04-2001
		JP 2002522402 T	23-07-2002
		US 6479680 B1	12-11-2002
		ZA 200101003 A	06-02-2002